

**Slovenská technická univerzita
v Bratislave
Fakulta elektrotechniky a informatiky**

Ing. Marcel Talacko

Autoreferát dizertačnej práce

**Príprava a štúdium vlastností YBCO supravodivých resp.
perovskitovských tenkovrstvových mostíkov ožiarených
elektrónovým zväzkom**

Evidenčné číslo: FEI-104400-9053

**na získanie akademického titulu
doktor („philosophiae doctor“, v skratke „PhD.“**

v doktorandskom študijnom programe: Fyzikálne inžinierstvo
v študijnom odbore: Elektrotechnika
Forma štúdia: denná

Bratislava, 7.6.2022

Dizertačná práca bola vypracovaná na

Elektrotechnický ústav, Slovenská akadémia vied v Bratislave

Predkladateľ:

Marcel Talacko

Elektrotechnický ústav, Slovenská akadémia vied

Dúbravská cesta 9

Bratislava, 841 04

Školiteľ:

RNDr. Marianna Španková, PhD.

Elektrotechnický ústav, Slovenská akadémia vied

Dúbravská cesta 9

841 04 Bratislava

Oponenti:

RNDr. Alexander Cigáň, CSc.

Ústav merania, Slovenská akadémia vied

Dúbravská cesta 9

Bratislava, 841 04

Doc. RNDr. Tomáš Pleceník, PhD.

Fakulta matematiky, fyziky a informatiky UK

Mlynská dolina F1

842 48 Bratislava

Autoreferát bol rozoslaný:

Obhajoba dizertačnej práce sa bude konať dňa 24.8.2022 o 10:00 h.

na Elektrotechnickom ústave SAV, Dúbravská cesta 9, 841 04 Bratislava

.....
rektor STU alebo dekan fakulty, ak sa doktorandský
študijný program uskutočňuje na fakulte
(meno a priezvisko s uvedením titulov)

Obsah

1	Úvod	1
2	Ciele dizertačnej práce	2
3	Úvod do danej problematiky	3
4	Použité experimentálne metódy	5
5	Doterajší stav	5
6	Výsledky a diskusia	6
7	Záver.....	15
8	Referencie	16
9	Zoznam vedeckých výstupov	19

1 Úvod

Dizertačná práca je súčasťou dlhodobého výskumu venujúceho sa problematike pohybu vírov vo vysokoteplotných supravodičoch (VTS), konkrétne materiálu $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO), naneseného na rôznych podložkách vo forme tenkej vrstvy, vytvarovaného do mostíkových štruktúr a ožiareného definovaným elektrónovým zväzkom. Vplyvom ožiarenia dochádza v exponovanej oblasti k viacerým efektom schopným vyvolať štruktúrne zmeny v materiáli. Kľúčovým prvkom tejto práce je ovplyvniť supravodivosť v ožiarenej oblasti - potlačiť supravodivý parameter usporiadania a vytvoriť modelovú štruktúru, na ktorej by bolo možné pozorovať koherentný pohyb vírov. Pretože vlastnosti supravodičov tohto typu sú extrémne náchylné na rozloženie atómov v kryštalickej mriežke, obzvlášť kyslíkov, je potrebná vhodná metóda na ich jemné ladenie. Ukazuje sa, že energia dopadajúcich elektrónov 30 keV môže byť v určitých prípadoch dostatočná k tomuto účelu. Na ožarovanie bol použitý bežne dostupný rastrovací elektrónový mikroskop (SEM).

Výskumy orientované na kontrolu pohybu vírov sa popri snahe zlepšiť pochopenie fyziky vírov ukázali byť užitočné v zmysle zdokonalenia už existujúcich supravodivých zariadení ako Josephsonov generátor a oscilátor, štandard napätia alebo pasívne mikrovlnné prvky (filtre, rezonátory, antény).

Štruktúrne vlastnosti materiálov využívaných v supravodivej mikroelektronike sú zásadné pre funkcionality a preto musia byť v plnej miere kontrolované pre dosiahnutie maximálnej využiteľnosti v praxi. Predovšetkým sa to týka rozloženia atómov vo vnútri štruktúry, ktoré tvoria kryštalickú mriežku a ďalej prímiesových alebo substitučných atómov, ktoré sú zavedené buď úmyselne za účelom zlepšiť vlastnosti materiálu, alebo neúmyselne formou kontaminácie. Miera kontaminácie môže byť do určitej miery regulovaná – minimalizovaná, a to predovšetkým zvolením vhodného technologického postupu výroby alebo vákuovými podmienkami, no prítomná je vždy a nemôže byť eliminovaná úplne. Ako najčastejšou a dobre známou kontamináciou sú organické látky a ich zlúčeniny obsahujúce uhlík vyskytujúce sa v atmosfére (predovšetkým molekuly CO_2).

Pôsobením elektrónového zväzku sa na povrchu exponovanej plochy vytvára kontaminačná uhlíková vrstva. Hoci vplyv samotnej uhlíkovej kontaminácie nie je významný v zmysle okamžitých účinkov elektrónového bombardovania na supravodivé vlastnosti YBCO, zato sa ukázal byť zásadný z dlhodobého časového hľadiska. Ukázalo sa, že pôsobením uhlíkovej kontaminácie dochádza popri prirodzenej degradácii tenkých vrstiev supravodiča YBCO k silnej degradácii práve v mieste ožiarenia než mimo nej.

2 Ciele dizertačnej práce

Fyzikálne javy vznikajúce počas expozície mostíkov dopadajúcimi elektrónmi sa javia byť kľúčové k pochopeniu danej problematiky, ktoré by malo viesť k realizácii možného riadeného koherentného pohybu vírov v mostíkoch. Ciele dizertačnej práce môžeme s ohľadom na technickú vybavenosť rozdeliť do nasledujúcich častí:

- 1) Príprava tenkých YBCO vrstiev na rôznych podložkách pomocou PLD, ich tvarovanie do mostíkových štruktúr a ich elektrická charakterizácia.
- 2) Vyhodnotenie elektrónmi exponovaných mostíkov na definovanej ploche v tvare kanálov s rôznou šírkou metódami elektrického transportného merania, mikro-Ramanovou spektroskopiou, Röntgenovou fotoelektrónovou spektroskopiou, Transmisnou elektrónovou mikroskopiou.
- 3) Zisťovanie vplyvu bombardovania elektrónmi vzhľadom na použitú podložku a parametre pri expozícii.
- 4) Vytvorenie modelovej štruktúry pre štúdium dynamiky mriežky vírov a sledovanie koherentného pohybu vírov aplikovaním frekvencií v oblasti mikrovln.

3 Úvod do danej problematiky

Magnetické pole (MP) preniká supravodičom II. typu formou vírov s veľkosťou jedného kvanta magnetického toku daný základnými konštantami $\phi_0 = h/2e$. Vír pretína supravodič v smere MP v tvare trubice, po obvode ktorej obieha supravodivý prúd, pričom jadro víru, je v nesupravodivom (normálnom) stave. Aby sa pri nízkych teplotách a v prítomnosti MP dosiahol rovnovážny stav s minimálnou potenciálnou energiou, víry sa usporiadajú do mriežkovej štruktúry zvanej Abrikosova vírová mriežka a v ideálnom stave vykazuje hexagonálnu symetriu. V skutočnosti je Abrikosova mriežka deformovaná, za čo zodpovedá prítomnosť náhodných defektov a nehomogenít priťahujúcich vír k sebe.

Vlastnosti supravodiča sú bezprostredne podmienené interakciou prúdu pretekajúcim supravodičom s magnetickými vírmi prítomnými v dôsledku vonkajšieho MP alebo ako dôsledok indukovaného MP pretekajúcim prúdom samotným. Okrem toho, víry sa podľa podmienok môžu nachádzať v rôznych stavoch. Aplikovaním elektrického prúdu pôsobí na vírové centrá Lorentzova sila udávajúca víry do pohybu, disipatívna viskózná sila (v dôsledku ktorej vzniká napätie) a stochastická tepelná fluktučná sila nútiaca víry fluktuovať okolo ich rovnovážnej polohy alebo ich náhodne presúva z jednej polohy s najnižšou lokálnou energiou do druhej. Proti pohybu pôsobí pružná pinningová sila. Pohyb vírov zapríčinený Lorentzovou silou generuje elektrické pole, ktoré je úmerné rýchlosti pohybu víru $\mathbf{E} = \mathbf{B} \times \mathbf{v}/c$. Elektrické pole je kolmé na smer pohybu vírov a paralelné s elektrickým prúdom, čo vedie k disipácii energie a vzniku elektrického odporu v supravodiči. Z toho dôvodu výroba vysoko výkonných supravodičov vyžaduje potlačenie mobility vírových centier a to ich účinným kotvením, tzv. pinningom. Defekty a záchytné centrá musia byť z dôvodu malej koherenčnej dĺžky ξ vo VTS veľkosti jadra vírového centra, aby ho vedeli efektívne uchytiť [1]. Ukázalo sa, že najvhodnejším zdrojom defektov v $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ (YBCO) sú kyslíkové vakancie vo vodivých CuO_2 rovinách, v „rezervoári nosičov náboja“ (Cu-O reťazce) a BaO rovinách. Úbytok kyslíka v tenkých vrstvách nemá až taký významný efekt na zníženie kritickej teploty T_c ako na potlačenie dolného kritického magnetického poľa [2,3]. To vedie k zníženiu energetickej bariéry a zvýšeniu hĺbky vniku. Výsledkom je ľahšia penetrácia a pohyb vírov vzniknutých pretekajúcim prúdom, čo sa prejaví napr. potlačením kritického prúdu I_c .

Kvázi-Josephsonov efekt

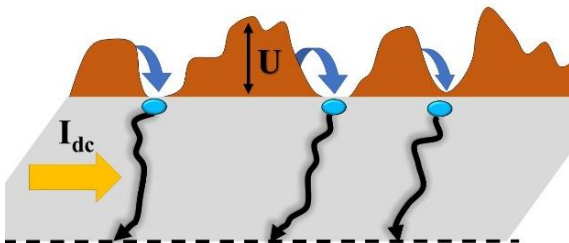
Skutočný Josephsonov jav s čistým sínusovým priebehom existuje len v spojoch, ktorých hrúbka rádovo nepresahuje koherenčnú dĺžku ξ . Vysokoteplotné supravodiče však vykazujú ξ extrémne krátku (pre YBCO $\xi_{a-b} \approx 3 \text{ nm}$ a $\xi_c \approx 0,5 \text{ nm}$) a spolu s rýchlou degradáciou spoja je veľmi náročné vytvoriť Josephsonov spoj pracujúci nad teplotou 77 K.

Zoberme do úvahy spoj S-c-S (supravodič – zúženie – supravodič) s rozmermi spoja väčšími ako koherenčná dĺžka, kedy je zrejmé, že ku klasickému Josephsonovmu javu nemôže dôjsť. Ak je prúd prechádzajúci spojom väčší ako kritický prúd I_c , Abrikosove víry sa pôsobením Lorentzovej sily dajú do pohybu. Režim koherentného pohybu vzniká, ak rýchlosť pohybu vírov videlená vzdialenosťou, ktorú musia prekonať je zhodná s nukleačnou rýchlosťou (frekvenciou) vírov. Vplyvom experimentálnych podmienok, kedy sú vyššie spomenuté frekvencie zhodné alebo jedna je násobkom druhej, nastáva uzamknutie frekvencií (*frequency lock*), čo sa na volt-ampérovej charakteristike prejaví vznikom prúdových skokov (stupienkov).

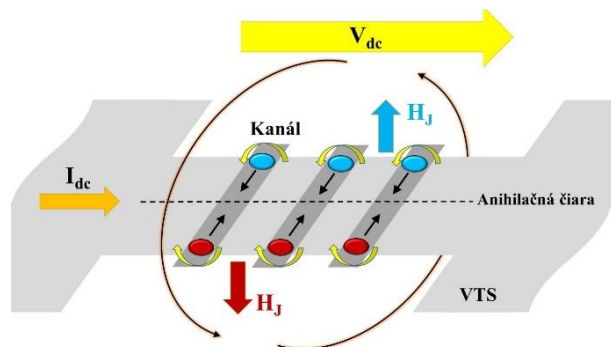
Prúdové stupienky sú priamym dôkazom uzamknutia frekvencie a vykazujú značnú podobnosť s tzv. *Shapiroovými stupienkami*, ktoré sa objavujú pri ožiarení klasického Josephsonovho spoja rádiovým žiarením [4]. Dodatočná synchronizácia vyvolaná mikrovlnným žiarením spôsobí vznik prúdových stupienok určených podľa Josephsonovej rovnice $V_n n \hbar \omega / 2e$, kde $n = 1, 2, \dots$. Hoci nehovoríme o klasickom tunelovom Josephsonovom spoji, tento jav plne vyhovuje Josephsonovým rovniciam.

Kanály pre ľahký pohyb vírov

Ku koherentnému pohybu vírovej mriežky dochádza v režime tečenia vírov, ale iba pri veľmi vysokých hodnotách prúdu (vzhľadom k I_c). Víry do supravodiča vnikajú v oslabených miestach s nízkou kondenzačnou energiou. Prevažne sa nachádzajú pozdĺž hrán supravodiča a vplyvom silového pôsobenia prúdu sa posúvajú naprieč supravodičom. Ich dráha, tiež označovaná ako kanál, je však spontánna a náhodná, pričom rýchlosť víru je silno ovplyvnená silou pinningu. Takýto proces je ilustračne znázornený na Obr. 3.1. Ak hovoríme o neupravenom supravodiči so spontánnymi kanálmi pre prúdenie vírov, z experimentálneho hľadiska je nemožné kontrolovať ich fyzikálne a geometrické parametre ako počet, pozícia, rýchlosť a pod, pričom akákoľvek synchronizácia sa navzájom zruší. Z praktického hľadiska je synchronizovaný pohyb vírov v takomto supravodiči veľmi obťažné pozorovať. Tieto problémy môžu byť prekonané zavedením vhodného periodického pinningu alebo obmedzením pohybu vírov do umelo vytvorených kanálov umožňujúcim ich ľahký prechod s dobre kontrolovateľnými podmienkami.



Obr. 3.1 Náhodná nukleácia a pohyb vírov v supravodivej tenkej vrstve.



Obr. 3.2 Schematické znázornenie pohybu vírov v umelo vytvorených kanáloch.

Úloha kanálov je zabezpečiť oproti zvyšku supravodiča relatívne nižšiu energetickú bariéru pre nukleáciu vírov (teda miesto prednostnej nukleácie) a ich voľný pohyb. Pri veľmi vysokej koncentrácii defektov, obzvlášť, keď stredná vzdialenosť medzi nimi je porovnateľná s ξ supravodiča, pinningová sila naopak klesá, pretože pri vysokých hustotách defektov sa ich potenciálové jamy začínajú prekrývať.

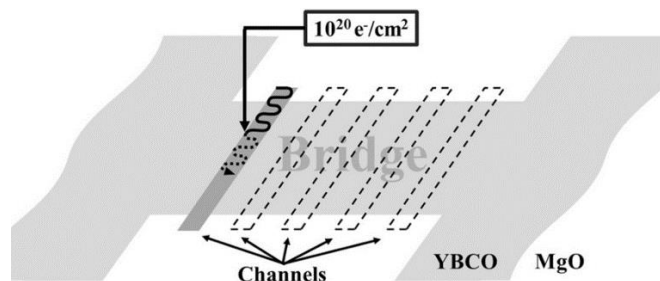
Obr. 3.2 znázorňuje mostíkovú štruktúru s umelo vytvorenými kanálmi. Kanál je oblasť s vysokou koncentráciou defektov, ktorá je orientovaná kolmo na smer pretekajúceho prúdu s dĺžkou kanála rovnou šírke mostíka. Účinkom pretekajúceho prúdu vzniká vlastné magnetické pole, ktoré vniká do supravodiča. Víry prednostne nukleujú na hranách mostíka, pričom pri MP generovanom prúdom hovoríme o nukleácii páru vír-antivír (V-AV). Vír vzniká na jednom okraji mostíka a antivír na opačnom, čo je dôsledok rozdielnej polarizácie MP na

opačných hranách mostíka (modrá a červená farba na Obr. 3.2). Rozdiel medzi nimi je iba v topologickom náboji, $n = \pm 1$. Vo vhodne namodelovanej štruktúre V-AV prednostne nukleujú v kanáli, cez ktorý sa voľne presúvajú. Príťažlivá sila medzi V a AV zapríčiní anihiláciu v strede mostíka. Navyiac, nukleačná rýchlosť vírov je závislá od hodnoty prúdu.

4 Použité experimentálne metódy

Vrstvy boli pripravované pulznou laserovou depozíciou (pulsed laser deposition, PLD) na monokryštalické jednostranne leštené podložky $\text{La}_{0.26}\text{Sr}_{0.76}\text{Al}_{0.61}\text{Ta}_{0.37}\text{O}_3$ (LSAT) a MgO s rozmermi $10 \times 10 \text{ mm}^2$ s hrúbk deponovaných vrstiev 70 až 100 nm. Vrstvy boli tvarované do mostíkových štruktúr pomocou štandardného fotolitografického postupu s následným mokým leptaním. Rozmery mostíkov boli prevažne $100 \times 15 \text{ }\mu\text{m}^2$. Meranie elektrických transportných vlastností mostíkov sa uskutočňovalo pred elektrónovým ožarovaním (EO), po ožiarení a v priebehu času (stárnutie). Závislosti odporu od teploty $R(T)$ a prúdu od napätia $I(V)$ boli merané štvorbodou metódou. Závislosť kritického prúdu od teploty $I_c(T)$ bola určená z $I(V)$ charakteristiky.

Na rastrovacom elektrónovom mikroskope (SEM) prispôbeným na elektrónovú litografiu sme mostíky exponovali elektrónmi s energiou 30 keV s orientáciou elektrónového zväzku kolmo na povrch vrstvy. Schematický náčrt procesu ožarovania je znázornený na Obr. 4.1. Ožiarená plocha pozostáva z úzkych kanálov periodicky sa opakujúcich pozdĺž mostíka a orientovaných kolmo na smer elektrického prúdu v mostíku. Dávka $\Phi = 10^{20} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ bola stanovená ako konštantná.



Obr. 4.1 Ilustrácia procesu ožarovania elektrónmi v SEM.

5 Doterajší stav

Vytváraniu kanálov v tenkých supravodivých YBCO vrstvách sa priamo venovali Jukna et al a Barboy et al, ktorí vo svojich prácach prezentovali úspešnú prípravu kanálov pre ľahký pohyb vírov pôsobením laserového lúča [5,6]. Lokálny ohrev YBCO vrstvy aktivoval difúziu kyslíkových atómov mimo exponovanú vrstvu a zapríčinil lokálne zníženie obsahu kyslíka. To viedlo k potlačeniu supravodivých parametrov pozdĺž exponovanej dráhy a vytvoril sa „požadovaný“ kanál pre ľahký pohyb vírov. Jednou z hlavných nevýhod týchto techník sú ťažkosti definovať geometriu kanála a relatívne široká zóna ochudobnená o kyslík súvisiaca s veľkou difúziou tepla.

Efektívnym spôsobom ako zavádzať defekty, je bombardovanie energetickými časticami ako ióny, neutróny, protóny alebo elektróny, na ktoré sú kuprátové supravodiče veľmi citlivé.

Na vyrazenie atómu z jeho mriežkovej polohy - vytvorenie Frenkelovho páru - je potrebná istá prahová energia E_d , ktorú atóm potrebuje získať a rádovo sa pohybuje v hodnotách 10 – 30 eV. V dôsledku veľkých rozdielov v atómových hmotnostiach v YBCO, najnižšia energia E_d odpovedá najľahším kyslíkovým atómom. Legris et al vo svojej práci ukázal vplyv elektrónového ožarovania (EO) na YBCO supravodič, kde boli použité energie elektrónov v rozsahu 0,1 – 2,4 MeV [7]. Z meraní prvýkrát zaznamenali zmenu T_c v dôsledku defektov spôsobených na atómoch O a Cu.

Tolpygo et al na základe experimentov s elektrónmi urýchlennými na energie od 20 do 120 keV vyčíslil hodnoty energií E_d , zvlášť pre kyslíky v CuO_2 rovinách ($E_{d,\text{plane}} \approx 8,4$ eV), a zvlášť pre kyslíky v Cu-O reťazcoch ($E_{d,\text{chain}} \approx 2,8$ eV) [8]. Ďalej demonštroval zvýšenie T_c o 2 – 3 K zmenou polôh kyslíkov v reťazcoch vplyvom EO, a pomerne veľkú difúziu O atómov v intersticiálnych pozíciách pri izbovej teplote [8,9].

V našom článku [10] bol študovaný efekt 30 keV elektrónového ožarovania na tenké vrstvy YBCO z pohľadu transportných meraní a mikro-Ramanovej spektroskopie. Ukázalo sa, že celkový dopad ožarovania na elektrické a štruktúrne vlastnosti YBCO záviseli od energie elektrónov, dávky, celkovej kvality vrstiev ale aj od ich hrúbky. Výsledky práce naznačili perspektívne využitie EO na prípravu kanálov schopných koherentne viesť víry.

Výsledky ukazujú, že energia elektrónov 20 – 40 keV je dostatočne malá na to, aby nespôsobila žiadne negatívne vplyvy vo vodivostných rovinách, a pritom dostatočne veľká na preusporiadávanie len reťazcových kyslíkov. V prípade našich podmienok, kedy energia dopadajúcich elektrónov bola 30 keV je maximálna prenesená energia $E_m = 4,24$ eV, čo spĺňa podmienku minimálnej potrebnej energie na vytrhnutie reťazcového kyslíka.

Seo et al ukázal, že na preusporiadávanie reťazcových kyslíkov je dostatočná nižšia energia ako E_d [11]. Mechanizmus tohto procesu sa uskutočňuje prostredníctvom nepružných zrážok a vzniku nábojovej disbalancie, ktorá vedie k preskokom atómov O(5) do O(1) alebo z jednej polohy O(1) do inej. Príľahlá vakancia v oblasti kyslíkového atómu môže vyvolať ožarovaním vybudenu difúziu pri energiách < 1 eV. Takýto proces sa prednostne deje pri preskokoch $\text{O}(1) \rightarrow \text{O}(5)$, $\text{O}(1) \rightarrow \text{O}(4)$ alebo $\text{O}(5) \rightarrow \text{O}(5)$ [12].

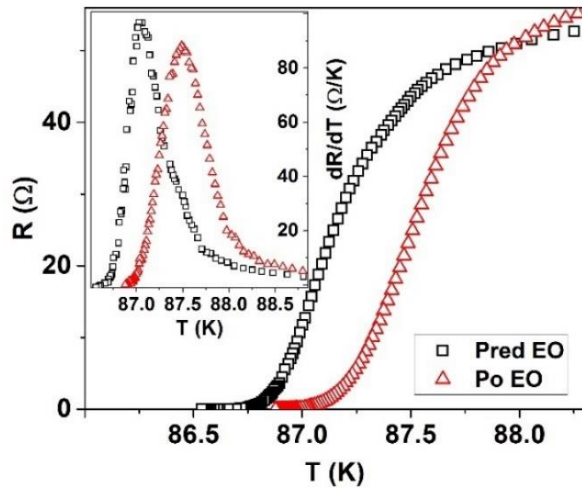
6 Výsledky a diskusia

Transportné merania

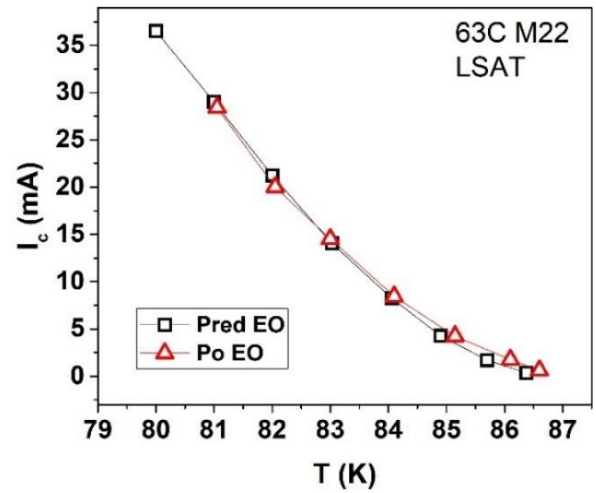
Vplyv elektrónového ožarovania bol predovšetkým analyzovaný pomocou elektrických transportných meraní, ktoré sa realizovali pred a po elektrónovom ožarovaní (EO) a po niekoľkých mesiacoch až rokoch neskôr. Typické hodnoty kritických teplôt T_c čerstvo pripravených mostíkov boli ~ 85 K pre MgO podložky a 87 K pre LSAT podložky. Šírka prechodu do supravodivého stavu bola $\Delta T \approx 1$ K. Všeobecný jav pozorovaný pre všetky vyšetrované vzorky po EO bol nárast normálneho odporu a rozšírenie prechodu do supravodivého stavu ΔT , čo je v súvislosti s EO zapríčinené zvýšením rozptylu nosičov náboja na defektoch [13]. V prípade vrstiev narastených na podložke LSAT sa po EO všeobecne pozorovalo mierne zlepšenie T_c so stagnáciou $I_c(T)$. Tendenciou bolo mierny nárast T_c v priemere o 0,2 – 0,3 K bez ohľadu nato, či došlo k potlačeniu I_c alebo nie. Typické $R(T)$ a $I_c(T)$ závislosti pre YBCO/LSAT so zvýšenou T_c sú zobrazené na Obr. 6.1. Kritická teplota sa po EO zvýšila z 86,6 K na 86,9 K, rovnako sa zväčšila šírka prechodu ΔT o 0,1 K.

Zlepšovaniu T_c môžeme pripísať zlepšenie dopovania CuO_2 rovín voľnými nosičmi náboja, ktoré poskytujú Cu-O reťazce. Predpokladáme ožarováním stimulovanú reorganizáciu reťazcových kyslíkov, dominantne preskoky O(5) do O(1) polôh a predlžovanie reťazcových segmentov. Naopak stagnácia I_c nedokazuje žiadne zmeny v CuO_2 rovinách. Rozširovanie prechodu ΔT_c je známe pri vzorkách ochudobnených o kyslík [14].

Pri vrstvách YBCO narastených na podložkách MgO v porovnaní s vrstvami narastenými na podložkách LSAT prakticky vôbec nepozorujeme zlepšenie T_c , ale oveľa častejšie je jej mierne alebo väčšie potlačenie. Jedna z takýchto vzoriek je zobrazená na Obr. 6.2a, b zobrazujúcich supravodivý prechod a $I_c(T)$. Po EO pozorujeme pokles T_c , rozširovanie prechodu ΔT_c s prítomným dlhým chvostom na downsete. Obzvlášť je znateľné potlačenie I_c . Predpokladom je nárast rozptylových centier, zníženie pinningovej sily a rozbíjanie kyslíkových reťazcov. Ako ukážeme neskôr, takéto správanie bolo kľúčové pre pozorovanie kvázi-Josephsonovho javu.

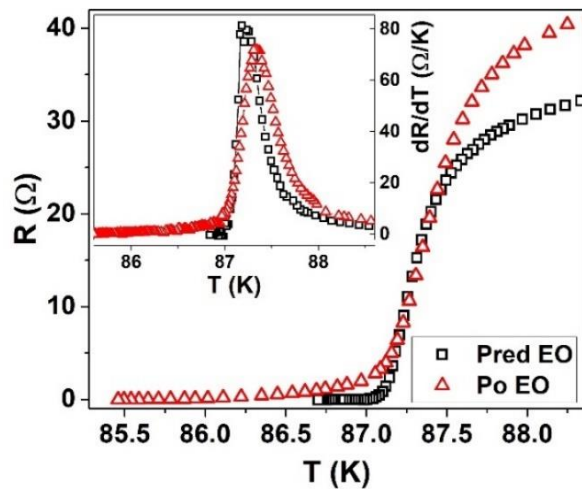


a)

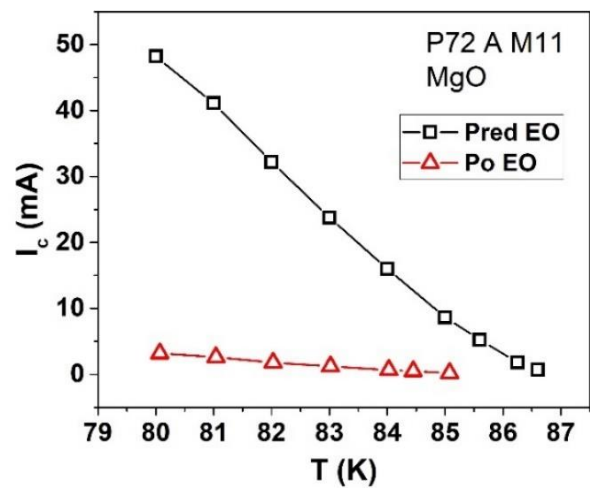


b)

Obr. 6.1 a) $R(T)$ a b) $I_c(T)$ charakteristiky vrstvy narastenej na LSAT podložke zaznamenané pred a po EO. Inset: $dR/dT(T)$ charakteristika zachytená v prechode do supravodivého stavu.



a)



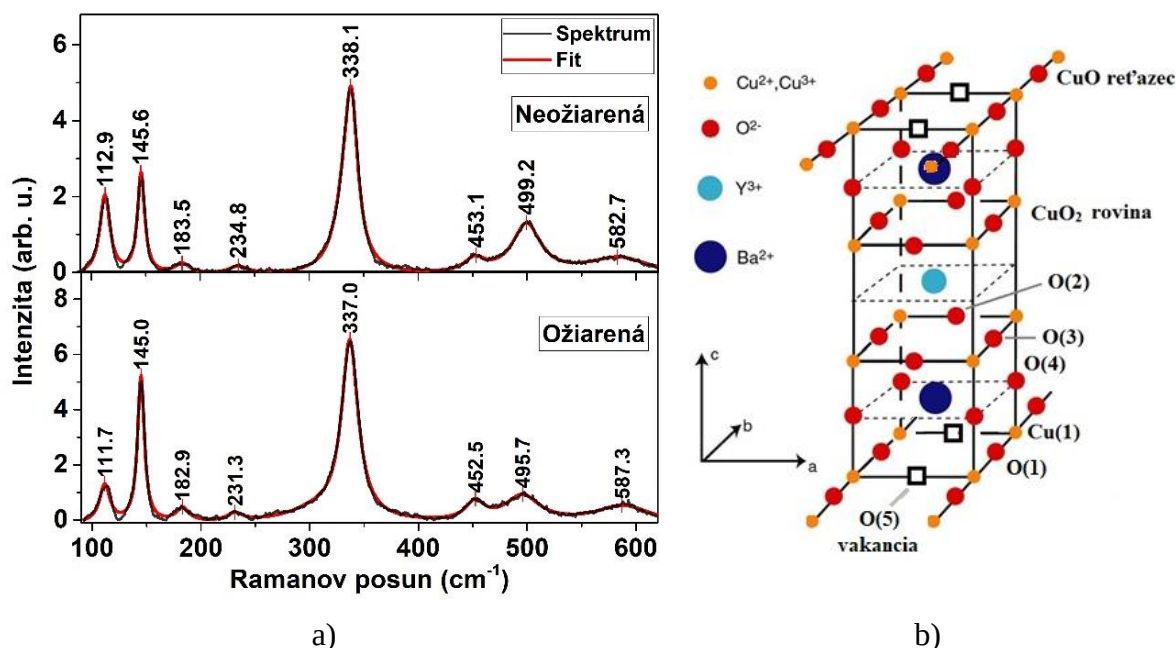
b)

Obr. 6.2 a) $R(T)$ a b) $I_c(T)$ charakteristiky vrstvy narastenej na MgO podložke zaznamenaná pred a bezprostredne po EO. Inset: $dR/dT(T)$ zachytená v prechode do supravodivého stavu.

Mikro-Ramanova spektroskopia

Ramanove spektrum obsahuje niekoľko zreteľných a dobre známych módov charakteristických pre tenkovrstvový supravodič YBCO [11,15–21]. Na Obr. 6.3a je porovnanie spektier pre neožiarenú a elektrónmi ožiarenú časť vzorky. Typickými pre EO plochy boli zmeny v pomere intenzít a pokles vlnových čísel pre Cu(2) a O(4) módy [22]. Mierny nárast intenzity $\sim 234\text{ cm}^{-1}$ patriaci Cu-O reťazcom odzrkadľuje ich trhanie. V súlade je posun píku $\sim 583\text{ cm}^{-1}$ smerom k vyšším vlnovým číslam patriaci O(1). Mód 504 cm^{-1} priamo súvisí s kyslíkom O(4) v CuO_2 rovinách a jeho posun k nižším vlnovým číslam indikuje ochudobnenie o kyslík. Označenie atómov v základnej bunke YBCO je zobrazené na Obr. 6.3b.

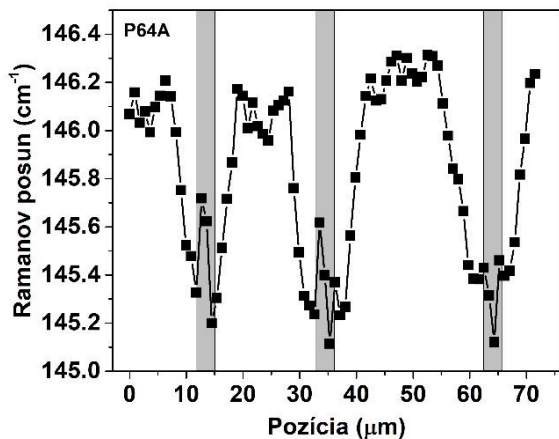
Mód O(2,3) so signálom 335 cm^{-1} je kvantitatívnym indikátorom obsahu kyslíka v štruktúre a vykazuje oproti štandardnému Lorentziánu intrinzičný asymetrický Fano profil. Miera asymetrie závisí od obsahu kyslíka a platí, že čím je obsah kyslíka menší, tým väčšia je symetria píku [17,18]. Symetria funkcie je určená tzv. Fanovým parametrom asymetrie q a v limite $q \rightarrow \pm\infty$ sa funkcia stáva plným Lorentziánom (Obr. 6.5). Nárast parametra q ukazuje, že v ožiarenej časti mostíka dochádza k ochudobneniu kyslíkom. Ukážkou rovnomernej distribúcie vzniknutých zmien po EO je Obr. 6.4a zobrazujúci extrahovanú polohu píku $\sim 145\text{ cm}^{-1}$ ako funkcia polohy z lineárneho skenu nasnímaného pozdĺž mostíka naprieč 3 kanálom a sivé pruhy znázorňujú polohu kanálov. Pokles vlnového čísla pre tento mód naznačuje redistribúciu kyslíka aj v CuO_2 rovinách.



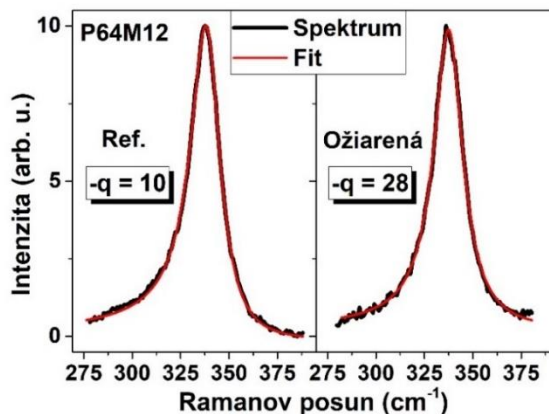
Obr. 6.3 a) Ramanove spektrá nasnímané mimo EO plochu a nasnímané priamo v kanáli, b) ortorombická štruktúra $\text{Y}_1\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ pre $x = 0$.

Komplexný tvar/štruktúra módu O(4) je typický v kyslíkom ochudobnených vrstvách a môže nasvedčovať multifázovému zloženiu kryštalickej štruktúry [22,23]. Spektrá na tejto pozícii sú superpozíciou koexistujúcich fáz s typickými signálmi 503 cm^{-1} patriaci Ortho-I fáze, 489 cm^{-1} prislúchajúci Ortho-II fáze a 473 cm^{-1} patriaci tetragonálnej fáze. Nárast intenzity signálu v rozmedzí $470 - 489\text{ cm}^{-1}$ naznačuje trhanie kyslíkových reťazcov. Ďalším takýmto

ukazovateľom je mód Cu(2), ktorý je v $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ prevažne zz polarizovaný a v $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ prevažne xx polarizovaný. Preto jeho viditeľnosť silno závisí od konfigurácie Ramanovho mikroskopu. Ďalším ukazovateľom je mód Ba okolo 116 cm^{-1} , ktorého pozícia sa posúva k nižším vlnovým číslam a jeho intenzita slabne s narastajúcou koncentráciou tetragonálne a Ortho-II fázy [22].



Obr. 6.4 Zmena frekvencie módu 145 ako funkcia polohy určená z čiarového skenu. Sivé pruhy znázorňujú polohu kanálov.

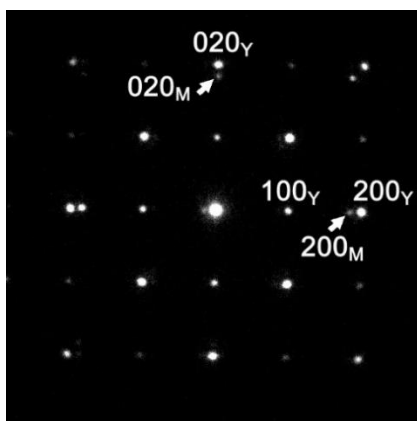


Obr. 6.5 Múd O(2)-O(3) opísaný Fano asymetrickou funkciou. Asymetrickosť piku je opísaná parametrom q . Křivka sa stáva plným Lorentziánom, ak $q \rightarrow \infty$.

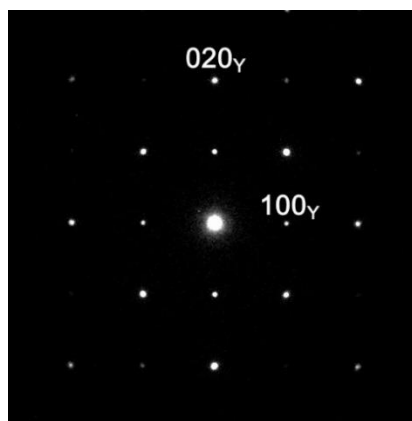
Výsledky z Ramanovej spektroskopie nám ukazujú, že EO je schopné zapríčiniť vznik defektov v štruktúre. Môžeme tvrdiť, že zmeny sa dejú len na kyslíkových atómoch. Najväčší podiel zmien je pozorovaný na Cu-O reťazcoch a ojedinele v CuO_2 rovinách. Zmeny popísané vyššie zároveň nie sú výrazné, preto sa môžeme domnievať, že hlavným efektom bude redistribúcia kyslíkových atómov, prevažne ich preskoky medzi O(4), O(5) a O(1). Takéto procesy by mohli vysvetľovať mierne zmeny T_c po EO. LSAT má lepšie mriežkové prispôsobenie a vrstva na nej rastie kvalitnejšie ako v prípade MgO. Preto pozorované zlepšenie T_c bolo pravdepodobne spôsobené predlžovaním Cu-O reťazcov.

Analýza transmisnou elektrónovou mikroskopiou

TEM analýza potvrdila epitaxný rast YBCO vrstiev na LSAT a MgO podložkách. Experimentálna selektívna elektrónová difrakcia na Obr. 6.6a a b odzrkadľuje rozdielne neprispôsobenie štruktúry YBCO k mriežkovým parametrom podložiek MgO a LSAT. Väčšie neprispôsobenie YBCO k podložke MgO 7,7 % v smere [010] a až 9,3 % v smere [100] spôsobilo relaxáciu vrstvy, čo sa prejavilo zdvojením difrakčných stôp do párov (Obr. 6.6a). V každom páre sa nachádza difrakčná stopa od YBCO vrstvy a od podložky MgO, označená ako Y a M. V prípade podložky LSAT je mriežkové neprispôsobenie 0,46 % v smere [010] a 1,3 % v smere [100] (difrakčné body vrstvy YBCO a podložky LSAT sa na Obr. 6.6b prekrývajú). TEM analýza ďalej ukázala dvojčatenie YBCO vrstvy na podložke LSAT (Obr. 6.7a) a tvorbu epitaxných mozaikových blokov oddelených malouhlovými hranicami v prípade YBCO vrstvy nanesej na MgO podložke (Obr. 6.7b).

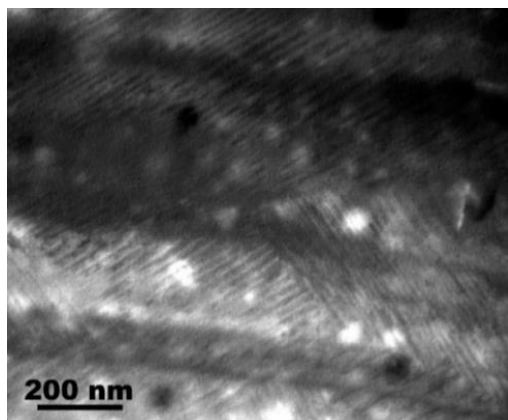


a)

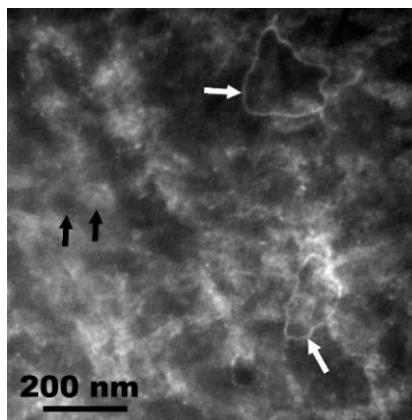


b)

Obr. 6.6 Experimentálna selektívna elektrónova difrakcia TEM tenkej YBCO vrstvy na podložkách a) MgO a b) LSAT).



a)



b)

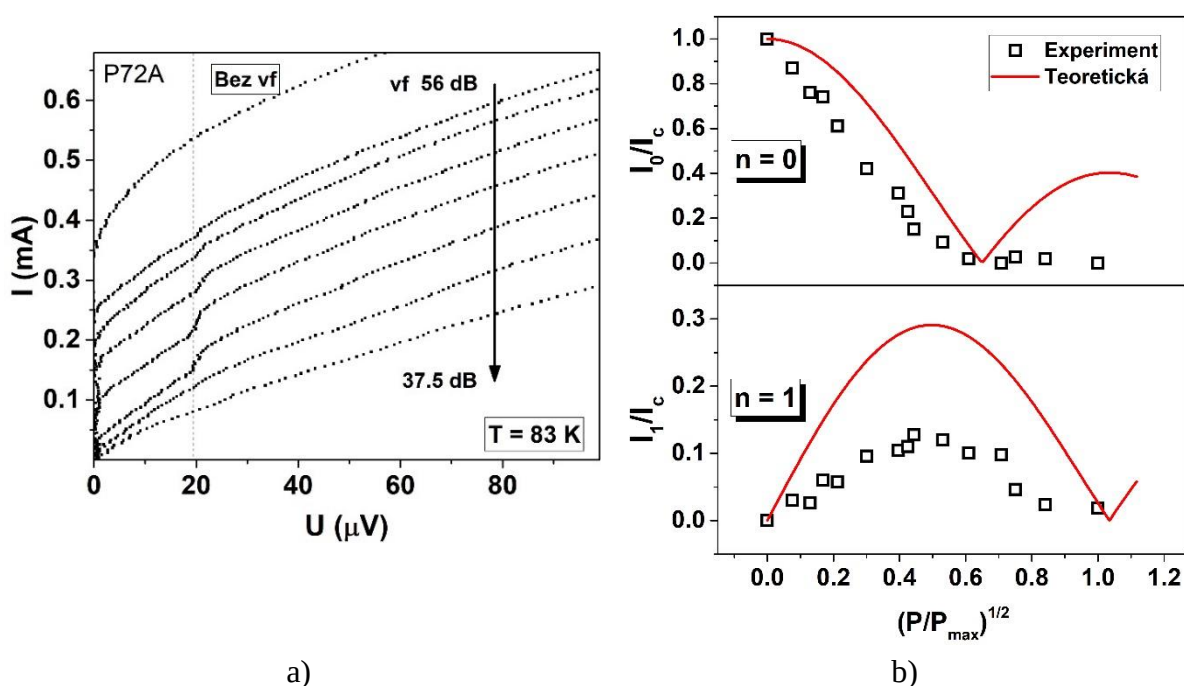
Obr. 6.7 a) Dvojčatenie v YBCO vrstve narastenej na podložke LSAT b) mikroštruktúra YBCO vrstvy na podložke MgO zložená z mozaikových blokov oddelených malouhlovými hranicami. Biele a čierne šípky rozlišujú nejednotnú povahu domén.

Mikrovlnné meranie

Synchronizácia pohybu vírov bola zisťovaná meraním $I(V)$ charakteristík s aplikovaným mikrovlnným žiarením pri rôznych hodnotách útlmu a pri rôznych teplotách. Frekvencia žiarenia bola $f = 9,44$ GHz. $I(V)$ charakteristiky pre $T = 83$ K sú zobrazené na Obr. 6.8a. Bez aplikovaného mikrovlnného zdroja je priebeh na $I(V)$ charakteristike bez akýchkoľvek prejavu koherentného pohybu vírov. Postupne, pri správnej teplote a pri optimálnom výkone, dochádza k vzniku Shapirových stupienkov. Poloha týchto stupienkov je v súlade s generalizovanou Josephsonovou rovnicou. $R(T)$ charakteristiky tejto vzorky sú zobrazené na Obr. 6.2.

Predpokladom je, že výška stupienkov bude mať oscilačný charakter opísateľný Besselovským správaním. Takéto správanie ako prví popísali Grimes a Shapiro [24], ktoré ďalej rozvinul Russer [25]. Táto teória je dnes nazývaná RSJ (*Resistive Shunted Junction*) a efektívne popisuje správanie sa $I(V)$ charakteristík so Shapirovými stupienkami. Podľa RSJ teórie je výška prúdového stupienka popísaná vzťahom $\Delta I_n = 2I_c \cdot J_n[I_{vf}/\Omega]$, kde I_c je kritický prúd bez aplikovaného mikrovlnného zdroja, J_n je Besselova funkcia prvého druhu

a n -tého rádu, I_{vf} je amplitúda prúdu mikrovlnného žiarenia a $\Omega = \frac{hf_{ext}}{2eRI_c}$ je normalizovaná frekvencia, kde $R = R_n$ je paralelný odpor a f_{ext} je frekvencia mikrovlnného žiarenia. Analýza výšky stupienku pre $n = 1, 2$ je zobrazená na Obr. 6.8b, červená krivka predstavuje teoretický priebeh. Odpor $R = 16 \Omega$ sa určil ako fitovací parameter. Vývoj výšky stupienkov od výšky výkonu mikrovlnného žiarenia je v kvantitatívnej zhode s teoretickým RSJ modelom. Ich veľkosť je však nízka v porovnaní s maximálnym prúdom bez aplikovaného mikrovlnného zdroja, rovnako aj v porovnaní s teoreticky vypočítaným priebehom. Dôvodom môže byť veľký pretekajúci prúd a neoptimálne synchronizačné podmienky. Pre $n = 0$ je možné po prvom minime pozorovať opätovný jemný nárast I_0/I_c , čo však neplatí pre $n = 1$, kedy nábeh do ďalšieho maxima je úplne potlačený. Takéto správanie môžeme pripísať komplikovanej synchronizácii vírov pre vyššie harmonické z dôvodu vysokého pretekajúceho jednosmerného prúdu.



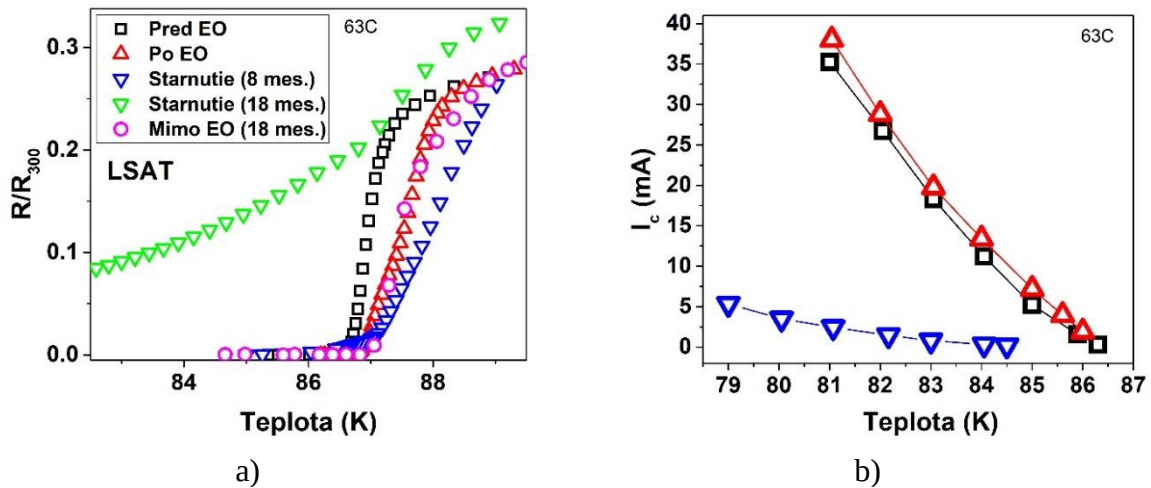
Obr. 6.8 a) $I(V)$ charakteristiky bez a s aplikovaným mikrovlnným žiarením pri rôznych úrovniach výkonu a b) Normalizovaná výška prúdového stupienku v závislosti od veľkosti aplikovaného mikrovlnného žiarenia pre $n = 0$ a $n = 1$. Červená krivka predstavuje teoretickú hodnotu.

Nedokonalá synchronizácia sa ďalej odráža zaoblením stupienkov a ich rozmazávaním. Príčinou je nehomogenita buď v samotnom kanáli, alebo v celom mostíku. V prípade nehomogenity vyskytujúcej sa v kanáli sa môže prejavovať rozdielna miera pinningu, čo má vplyv na voľný a neviazaný pohyb v kanáli. V prípade mostíkovej nehomogenity je koherentný pohyb vírov v kanáloch prekrytý náhodným pohyb vírov mimo kanálov.

Stabilita ožiarených mostíkov

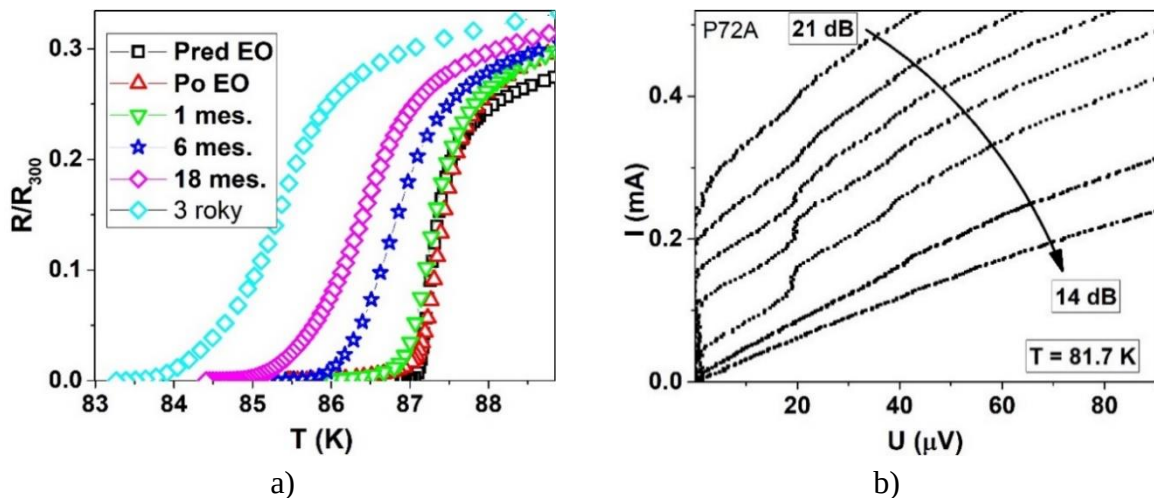
Transportné merania uskutočnené s dostatočným časovým rozstupom ukázali postupnú degradáciu supravodivých vlastností ožiarených štruktúr v čase. $R(T)$ závislosti na Obr. 6.9 pre LSAT podložku ukazujú pomerne malú zmenu vlastností hneď po ožarovacom procese. Naopak, s narastajúcim časom môžeme pozorovať postupné zvyšovanie normálneho odporu,

znižovanie T_c a narastanie šírky prechodu do supravodivého stavu ΔT . Ešte dlhšie starnutie spôsobilo ešte výraznejšie potlačenie. Vzorky sa následne merali mimo ožiarenú plochu, aby sa zistilo, či štruktúry degradovali celé, alebo sa jedná o ožarovanie podporenú degradáciu exponovaných mostíkov. $R(T)$ charakteristika a dR/dT ukázali len mierne potlačenie T_c a ΔT , bezvýznamné v porovnaní s ožiarenými kanálmi. Meranie po dvoch a troch rokoch starnutia bolo sprevádzané dvojitém prechodom do supravodivého stavu, popísané vyššie. Rovnaký priebeh degradácie v čase bol pozorovaný bez ohľadu na použitú podložku.



Obr. 6.9 Časový vývoj starnutia získané pred a krátko po EO a po dlhej dobe starnutia.

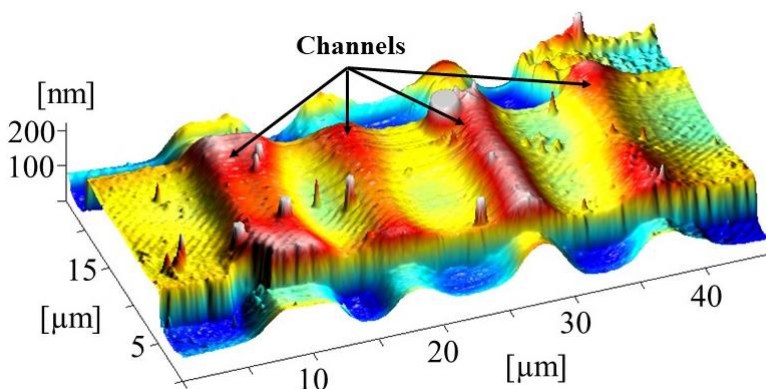
Naopak tomu bolo pri vzorke P72A. Obr. 6.10 zobrazuje $I(V)$ charakteristiky tejto vzorky s aplikovaným externým mikrovlnným zdrojom pri rôznych hodnotách výkonu meraných po 3 rokoch od EO. Prítomnosť prúdových stupienkov je dôkaz, že synchronizácia vírov s vonkajším žiarením prebieha aj s odstupom času. Zaujímavosťou je, že kvalita stupienkov ostala aj napriek pokročilému starnutiu rovnaká. Degradáciou sa znížila T_c , čím sa znížila teplota, pri ktorej prebiehala najefektívnejšia synchronizácia, pričom rozsahy prúdov, pri ktorých dochádza k objaveniu stupienkov, ostali zachované.



Obr. 6.10 $I(V)$ charakteristiky merané s aplikovaným externým mikrovlnným zdrojom pri rôznych úrovniach útlmu.

Kontaminácia uhlíkom

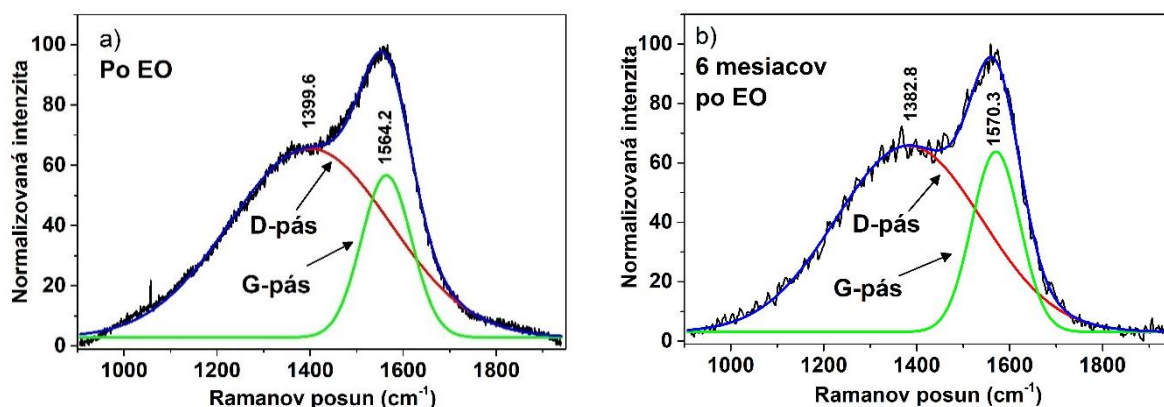
Prítomnosť pomerne hrubej kontaminačnej vrstvy nachádzajúcej sa v mieste ožiarenia prezentuje 3D topografia zaznamenaná AFM mikroskopom na Obr. 6.11. Ramanove spektrum je zachytené na Obr. 6.12a znázorňujúcich Ramanove spektrum zosnímané v kanáli. Spektrá potvrdzujú prítomnosť vrstvy na báze uhlíka typické pre amorfnú štruktúru s dvomi hlavnými módmi charakteristickými pre uhlíkové zložky v rozsahu 1200 cm^{-1} až 1700 cm^{-1} [26,27]. Vibrácia okolo 1582 cm^{-1} sa nazýva grafitová alebo G-pás a je pripisovaná rovinným symetrickým vibráciám sp^2 uhlíkových reťazcov (C-C). Vibrácia okolo 1350 cm^{-1} je nazývaná „disorder-induced“ alebo „defect-induced“ (D-band) a je spájaná s sp^3 a sp uhlíkovými reťazcami, čiže nemôže byť pozorovaná vo vysoko kryštalickom grafit. Prítomnosť tejto fázy môže byť spôsobená napr. nečistotami [26].



Obr. 6.11 AFM trojrozmerná topografia povrchu YBCO.

Ramanova spektroskopia z pohľadu starnutia

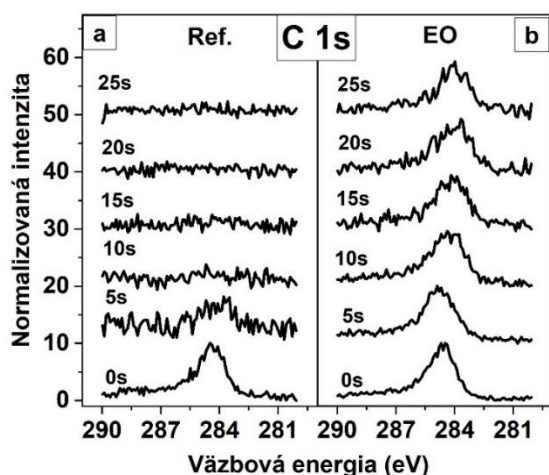
Podobne ako pri transportných meraniach sú časové zmeny viditeľné aj na Ramanových spektrách. Časový vývoj Ramanovho signálu je zachytený na Obr. 6.12a zobrazujúci spektrum nasnímané krátko po EO a Obr. 6.12b zobrazuje rovnaký signál po 6 mesiacoch neskôr. Veľmi široké D a G pásy na spektre zhotovené krátko po EO zobrazené na Obr. 6.12a signalizujú predovšetkým nízky stupeň grafitizácie a prevahu amorfnej fázy (a-C), s čím môžu byť spojené oxidačné procesy kvôli vysokej reaktivite [28,29]. Obr. 6.12b zobrazuje vývoj. Rozdiely pozorujeme v pozícii, šírke pásov a v pomere intenzít D a G pásiem I_D/I_G . Starnutie zapríčinilo posun G-pásku smerom k vyšším vlnovým číslam a pokles šírky pásu. Takáto zmena v čase môže byť priradená k zvyšujúcej sa koncentrácii kyslíka v uhlíkovej vrstve alebo k zvyšujúcej sa úrovni uhlíkovej fázy sp^2 [30–33]. Posun D-pásku môžeme podobne pripísať štruktúrnym zmenám [34]. Pomer integrovaných intenzít D-pásku a G-pásku, tzv. parameter I_D/I_G , je závislý od štruktúry vrstvy a je štandardne používaný na určenie stupňa grafitizácie alebo počtu defektov v grafitových materiáloch [30]. Ďalej viditeľný pokles pomeru intenzít I_D/I_G spolu s poklesom širok G a D pásov naznačuje narastajúci stupeň grafitizácie [30,35,36].



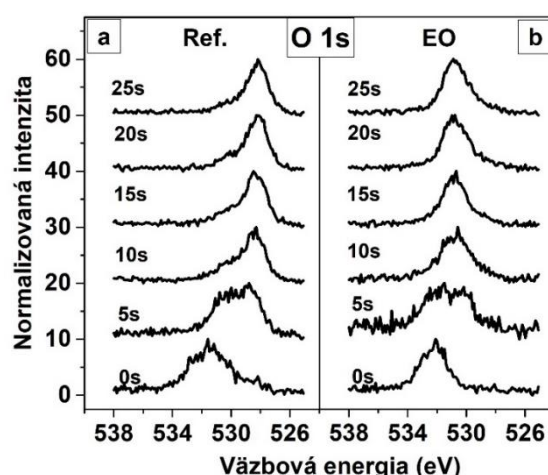
Obr. 6.12 Ramanove spektrá snímané v kanáli a) krátko po EO a b) po 6 mesiacov

XPS

Analýza XPS nám umožnila sledovať hĺbkový profil, vďaka čomu sme mohli zistiť schopnosť uhlíka penetrovať do štruktúry YBCO, respektíve vývoj chemických väzieb s hĺbkou profilu. Spektrá z mostíka sú konfrontované s referenčnými spektrami zosnímanými na rovnakej vzorke ďaleko od mostíka. Obr. 6.13a a Obr. 6.14b zobrazujú hĺbkové profily signálu pre C 1s a O 1s z referenčnej časti. Kontaminácia atmosférickým uhlíkom je bezprostredná a je dobre odzrkadlená prítomnosťou signálu od C 1s na Obr. 6.13a bez aplikácie leptania (0s). Prvým leptacím cyklom je odstránená a pre referenciu nie je po ďalších leptacích sekvenciách prítomný žiadny signál od uhlíka. Podobne pre signál O 1s (Obr. 6.14a), vibrácia okolo 532,4 eV bez použitia leptania patrí na povrchu adsorbovanej organickej kontaminácii z atmosféry [37]. Na druhej strane je prítomnosť signálu od uhlíka v EO časti očividná (Obr. 6.13b). Tiež môžeme pozorovať posun väzbových energií spolu s narastajúcim časom leptania (Obr. 6.13b a Obr. 6.14b). Spektrá z EO časti na Obr. 6.14b vykazujú veľmi nízku intenzitu signálu okolo 528,4 eV patriacemu Cu-O väzbám inak prítomným v referenčných spektrách. Táto absencia naznačuje trhanie Cu-O reťazcov a dekompozíciu kyslíka v CuO₂ rovinách blízko rozhrania uhlík/YBCO. Vysoká intenzita signálu okolo 530,9 eV spolu s posunom väzbovej energie v C 1s spektrách k hodnote 283,8 eV signalizujú uhlíčitánovú skupinu (CO₃)²⁻ pochádzajúcu od možného neznámeho oxykarbonátu. Možná je tvorba karbidov alebo oxykarbidov [38].



Obr. 6.13 XPS hĺbkové profily pre C 1s z a) referenčnej (neožiarenej) časti a b) EO mostíka.



Obr. 6.14 XPS hĺbkové profily pre O 1s z a) referenčnej (neožiarenej) a b) EO mostíka.

7 Záver

V práci sme ukázali, že nízkoenergetickým ožarovaním s energiou elektrónov 30 keV je možné zavádzaním porúch potlačiť supravodivosť v tenkej vrstve supravodiča YBCO. Štruktúrne zmeny vzniknuté po ožarovaní boli vyhodnocované Ramanovou spektroskopiou. Tá ukázala veľmi jemné zmeny na kyslíkových atónoch v reťazcových polohách, čo bolo podľa predpokladu s predošlými štúdiami. Nejednotnosť vo vedeckých kruhoch týkajúcich sa väzobných energií planárnych a reťazcových kyslíkov môže vychádzať z rozdielnych podmienok a rozdielnej technologickej príprave narastených vrstiev YBCO. Pozorovali sme, že reakcia na EO je silnejšia u podložiek MgO ako u LSAT. TEM analýza nám odhalila, že kým na LSAT podložke rastie YBCO vrstva ako monokryštalická, na MgO prebieha rast vo forme epitaxných blokov s nízkoúhlovými hranicami. Je dôležité spomenúť, že ožarovací proces, respektíve jeho reprodukovateľnosť silno závisela od aktuálnej kondície SEM-EBL, predovšetkým od prúdu, ktorý nebolo možné stabilne kontrolovať, preto sme sa vždy orientovali na reprodukovateľný parameter – toku elektrónov. Zvýšenie výťažnosti by si vyžadovalo ešte hlbšie študovanie štruktúr a vyriešenie spomenutých technických nedostatkov.

V práci sme demonštrovali jednu z funkčných modelových štruktúr s vytvorenými kanálmi schopnými ľahko viesť víry a dosiahnuť tak koherentný stav. Koherentný pohyb vírov sa docielil exponovaním mostíka mikrovlnným žiarením, čo sa prejavilo pozorovaním prúdových skokov na $I(V)$ charakteristikách, tzv. *Shapiroových stupienkov*. Ich poloha bola v zhode s obecnou Josephsonovou rovnicou dávajúcou do súvislosti frekvenciu externého mikrovlnného žiarenia so základnými konštantami e a $\hbar$. Správanie sa výšky stupienkov ako funkcia výkonu mikrovlnného žiarenia bolo v kvalitatívnej zhode s priebehom Besselových funkcií. Ďalej sme ukázali, že naša najstaršia modelová štruktúra je schopná vykazovať kvázi-Josephsonov jav ešte 3 roky od EO.

V súvislosti s časovým vývojom sme analyzovali degradáciu ožiarených mostíkov až do spomenutých 3 rokov od EO. Zistili sme možný vplyv uhlíkovej kontaminácie vzniknutej pri procese EO, ktorá bola analyzovaná Ramanovou spektroskopiou a elektrónovou fotoemisnou spektroskopiou. Stále je otvorená otázka, či môže takáto degradácia pomôcť koherentnému pohybu vírov alebo nie. To bude predmetom ďalšieho štúdia. Záverom môžeme skonštatovať, že ciele dizertačnej práce boli splnené bezozvyšku vo všetkých bodoch jej zadania.

8 Referencie

- [1] Nikolo M 1993 Flux dynamics in high-temperature superconductors *Supercond. Sci. Technol.* **6** 618–23
- [2] Wördenweber R 1999 Mechanism of vortex motion in high-temperature superconductors *Reports Prog. Phys.* **62** 187–236
- [3] Ossandon J G, Thompson J R, Christen D K, Sales B C, Kerchner H R, Thomson J O, Sun Y R, Lay K W and Tkaczyk J E 1992 Influence of oxygen deficiency on the superconductive properties of grain-aligned YBa₂Cu₃O_{7-δ} *Phys. Rev. B* **45** 12534–47
- [4] Shapiro S 1963 Josephson Currents in Superconducting Tunneling: The Effect of Microwaves and Other Observations *Phys. Rev. Lett.* **11** 80–2
- [5] Jukna A, Barboy I, Jung G, Banerjee S S, Myasoedov Y, Plausinaitiene V, Abrutis A, Li X, Wang D and Sobolewski R 2005 Laser processed channels of easy vortex motion in YBa₂Cu₃O_{7-δ} films *Appl. Phys. Lett.* **87** 192504
- [6] Barboy I, Jukna A, Bareli G and Jung G 2010 Quasi-Josephson effects generated by coherent vortex flow in easy motion laser processed channels *Phys. C Supercond. its Appl.* **470** S799–800
- [7] A. Legris, F. Rullier-Albenque, E. Radeva and P. Lejay 1993 Effects of electron irradiation on YBa₂Cu₃O_{7-δ} superconductor *J. Phys. I Fr.* **3** 1605–15
- [8] Tolpygo S K, Lin J-Y, Gurvitch M, Hou S Y and Phillips J M 1996 Effect of oxygen defects on transport properties and T_c of YBa₂Cu₃O_{6+x}: Displacement energy for plane and chain oxygen and implications for irradiation-induced resistivity *Phys. Rev. B* **53** 12462–74
- [9] Tolpygo S K, Lin J-Y, Gurvitch M, Hou S Y and Phillips J M 1996 T_c enhancement by low energy electron irradiation and the influence of chain disorder on resistivity and Hall coefficient in YBa₂Cu₃O₇ thin films *Phys. C Supercond.* **269** 207–19
- [10] Chromik, Camerlingo C, Sojková M, Štrbík V, Talacko M, Malka I, Bar I, Bareli G and Jung G 2017 Low energy electron beam processing of YBCO thin films *Appl. Surf. Sci.* **395**
- [11] Seo H W, Chen Q Y, Iliev M N, Johansen T H, Kolev N, Welp U, Wang C and Chu W-K 2005 Chain-oxygen ordering in twin-free YBa₂Cu₃O_{7-δ} single crystals driven by 20 keV electron irradiation *Phys. Rev. B* **72** 52501
- [12] Islam M S and Baetzold R C 1994 Atomistic mechanisms of oxygen diffusion in YBa₂Cu₃O₇ – and YBa₂Cu₄O₈ *J. Mater. Chem.* **4** 299–303
- [13] Vovk R V, Khadzhai G Y and Dobrovolskiy O V 2019 Tuning electric charge scattering in YBCO single crystals via irradiation with MeV electrons *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **30** 241–5
- [14] Cava R J, Hewat A W, Hewat E A, Batlogg B, Marezio M, Rabe K M, Krajewski J J, Peck W F and Rupp L W 1990 Structural anomalies, oxygen ordering and superconductivity in oxygen deficient Ba₂YCu₃O_x *Phys. C Supercond.* **165** 419–33
- [15] Huong P V, Bruyere J C, Bustarret E and Granchamp P 1989 Structure and orientation of a superconducting Y-Ba-Cu-O thin film on zirconia substrate. A study by micro-Raman spectroscopy *Solid State Commun.* **72** 191–4

- [16] C. C, I. D and M. L 2002 Micro-Raman spectroscopy on YBCO films during heat treatment *Supercond. Sci. Technol.* **15** 1606 – 1609
- [17] Hong S, Cheong H and Park G 2010 Raman analysis of a YBa₂Cu₃O_{7- δ} thin film with oxygen depletion *Phys. C Supercond.* **470** 383–90
- [18] J.M. L, T.R. F and T.P. M 1998 Measuring oxygen stoichiometry in YBa₂Cu₃O_{7-x} by micro-Raman spectroscopy *Supercond. Sci. Technol.* **11** 1137 – 1142
- [19] Macfarlane R M, Rosen H J, Engler E M, Jacowitz R D and Lee V Y 1988 Raman study of the effect of oxygen stoichiometry on the phonon spectrum of the high-T_c superconductor YBa₂Cu₃O_{7-x} *Phys. Rev. B* **38** 284–9
- [20] Poulakis N, Palles D, Liarokapis E, Conder K, Kaldis E and Müller K A 1996 Phase separation and softening of the O_{2,3} in-phase mode in the YBa₂Cu₃O_x superconductors *Phys. Rev. B* **53** R534--R537
- [21] Palles D, Poulakis N, Liarokapis E, Conder K, Kaldis E and Müller K A 1996 Raman study of the oxygen anharmonicity in YBa₂Cu₃O₇ (6.4<x<7.0) superconductors *Phys. Rev. B* **54** 6721–7
- [22] Iliev M, Thomsen C, Hadjiev V and Cardona M 1993 Resonant Raman scattering of oxygen-deficient YBa₂Cu₃O_{7- δ} : Evidence for the coexistence of ortho-I, ortho-II, and tetragonal microstructures *Phys. Rev. B* **47** 12341–4
- [23] Iliev M N, Hadjiev V G and Ivanov V G 1996 Raman Spectroscopy of Local Structure and Reordering Processes in YBa₂Cu₃O_{7- δ} -Type Compounds *J. Raman Spectrosc.* **27** 333–42
- [24] Grimes C C and Shapiro S 1968 Millimeter-Wave Mixing with Josephson Junctions *Phys. Rev.* **169** 397–406
- [25] Russer P 1972 Influence of Microwave Radiation on Current-Voltage Characteristic of Superconducting Weak Links *J. Appl. Phys.* **43** 2008–10
- [26] Tuinstra F and Koenig J L 1970 Raman Spectrum of Graphite *J. Chem. Phys.* **53** 1126–30
- [27] Zhang F, Jia Z, Wang Z, Zhang C, Wang B, Xu B, Liu X and Wu G 2021 Tailoring nanoparticles composites derived from metal-organic framework as electromagnetic wave absorber *Mater. Today Phys.* **20** 100475
- [28] Sadezky A, Muckenhuber H, Grothe H, Niessner R and Pöschl U 2005 Raman microspectroscopy of soot and related carbonaceous materials: Spectral analysis and structural information *Carbon N. Y.* **43** 1731–42
- [29] Ennos A E 1953 The origin of specimen contamination in the electron microscope *Br. J. Appl. Phys.* **4** 101–6
- [30] Ferrari A C and Robertson J 2000 Interpretation of Raman spectra of disordered and amorphous carbon *Phys. Rev. B* **61** 14095–107
- [31] Safaie P, Eshaghi A and Bakhshi S R 2016 Structure and mechanical properties of oxygen doped diamond-like carbon thin films *Diam. Relat. Mater.* **70** 91–7
- [32] Tamor M A, Vassell W C and Carduner K R 1991 Atomic constraint in hydrogenated “diamond-like” carbon *Appl. Phys. Lett.* **58** 592–4
- [33] Tamor M A and Vassell W C 1994 Raman “fingerprinting” of amorphous carbon films *J. Appl. Phys.* **76** 3823–30
- [34] Sze S-K, Siddique N, Sloan J J and Escibano R 2001 Raman spectroscopic

- characterization of carbonaceous aerosols *Atmos. Environ.* **35** 561–8
- [35] Marton M, Vojs M, Zdravecká E, Himmerlich M, Haensel T, Krischok S, Kotlár M, Michniak P, Veselý M and Redhammer R 2013 Raman Spectroscopy of Amorphous Carbon Prepared by Pulsed Arc Discharge in Various Gas Mixtures ed R Flammini *J. Spectrosc.* **2013** 467079
- [36] Ferrari A C, Robertson J, Ferrari A C and Robertson J 2004 Raman spectroscopy of amorphous, nanostructured, diamond-like carbon, and nanodiamond *Philos. Trans. R. Soc. London. Ser. A Math. Phys. Eng. Sci.* **362** 2477–512
- [37] Fetisov A V, Kozhina G A, Estemirova S K and Mitrofanov V Y 2015 On the room-temperature aging effects in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ *Phys. C Supercond. its Appl.* **515** 54–61
- [38] Huang L and Gu X 2018 Effects of sacrificial oxidation on surface properties of n- and p-type 4H- $\{\text{SiC}\}$: implications for metal contact behaviors *Semicond. Sci. Technol.* **34** 15011

9 Zoznam vedeckých výstupov

Publikácie publikované v databáze CC

M. Sojková, V. Štrbík, Š. Chromik, J. Liday, P. Vogrinčič, E. Dobročka, M. Španková, **M. Talacko**, Š. Gaži: *Stable fluoride based sputtering target for Tl-based cuprate superconducting thin film fabrication*, Vacuum, **119**, 250-255 (2015)

Š. Chromik, C. Camerlingo, M. Sojková, V. Štrbík, **M. Talacko**, I. Malka, I. Bar, G. Bareli, G. Jung: *Low energy electron beam processing of YBCO thin films*, Appl. Surf. Sci., **395**, 42-49 (2017)

Š. Chromik, M. Španková, **M. Talacko**, E. Dobročka, T. Lalinský, *Some peculiarities at preparation of Bi₄Ti₃O₁₂ films for bolometric applications*, App. Surf. Sci., **461**, 39-43 (2018)

N. Gál, V. Štrbík, Š. Gaži, Š. Chromik, **M. Talacko**, *Resistance Anomalies at Superconducting Transition in Multilayer N/S/F/S/N Heterostructures*, J Supercond Nov Magn, **32**, 213-217 (2019)

H. Alpern, M. Periyasamy, J. Tannous, G. Jung, I. Zaytseva, A. Rosová, Š. Chromik, V. Štrbík, **M. Talacko**, S. Yochelis, Y. Yacoby, O. Millo, Y. Paltiel, *Increasing the Transition Temperature of High-TC Superconductor Thin Films by Organic Linking of Gold Nanoparticles*. J Supercond Nov Magn **33**, 1941–1948 (2020)

G. Bareli, Š. Chromik, C. Camerlingo, **M. Talacko**, A. Rosová, M. Španková, V. Štrbík, M. Sojková, G Jung, *Substrate influence on low energy electron beam processing of YBa₂Cu₃O_{7-δ} thin films*, App. Surf. Sci., **535**, 147624 (2021)

M. Talacko, Š. Chromik, M. Španková, V. Štrbík, N. Gál, M. Mičušík, C. Camerlingo, G. Jung, *Aging of electron-written YBCO superconducting thin film structures*. J Mater Sci: Mater Electron **32**, 28687–28694 (2021).

Patentová prihláška

Š. Chromik, **M. Talacko**, M. Španková, G. Jung, *Spôsob prípravy kanálov s potlačenou supravodivosťou v YBa₂Cu₃O_{7-x} mikropáske s využitím skenovania elektrónovým lúčom*, patentová prihláška č. 50006-2020.

Konferenčné príspevky

M. Talacko, Š. Chromik, V. Štrbík, M. Sojková, M. Španková, G. Jung, G. Bareli, C. Camerlingo: *YBaCuO microbridges properties modification using low energy electrons*, SSSI, Piešťany, 2016.

M. Talacko, Š. Chromik, V. Štrbík, M. Sojková, M. Španková, G. Jung, C. Camerlingo: *YBaCuO microbridges properties modification using low energy electrons*, COST TO-BE Spring Meeting, Luxembourg, 2017.

M. Talacko, Š. Chromik, V. Štrbík, M. Sojková, M. Španková, G. Jung, C. Camerlingo: *Channels modification using low energy electron irradiation for potential coherent vortex motion applications in YBaCuO thin films superconductors.*, COST TO-BE Spring Meeting, Riga, 2017.

M. Talacko, Š. Chromik, V. Štrbík, M. Španková, N. Gál, G. Jung: *Channels modification using low energy electron irradiation for potential coherent vortex motion applications in YBaCuO thin films superconductors*, ICSM, Turkey, 2018.

Publikované príspevky na zahraničných vedeckých konferenciách

Š. Chromik, **M. Talacko**, G. Bareli, C. Camerlingo, M. Španková, A. Rosová, I. Bar, G. Jung, *Preparation, structural and electrical properties of YBCO strips with channels created by electron irradiation*. In SURFINT – SREN IV 2019: Extended Abstract Book. – Slovak Republic : Comenius University Bratislava, 2019, p. 64-65. ISBN 978-80-223-4811-9